

学 位 論 文 の 要 旨

階層化された不安定性を有する信号情報処理デバイス構築に向けた基本素子の作製

(Fabrication of element for fabrication of bio-inspired signal processing devices with hierarchical instabilities)

氏 名 丸山亮太 印

生体はデジタルコンピュータと比較し、エネルギー的に高効率な情報処理を行い、予期せぬ環境変化において、ゆらぎアトラクター選択の原理に基づき柔軟に振舞っていると考えられている。ここでアトラクターとは、環境変化によって攪乱されるまで、システムが留まる準平衡状態のことである。生物は、変動環境下において、新たにアトラクターを発生・消滅しつつ、その変動環境下に見合ったアトラクターへと自律的に遷移することにより、多数のアトラクターの中から一つを選択し、環境変化への柔軟性や適応性を獲得している。本研究では、そのような特徴を持つような生体を模倣した信号情報処理デバイスの創製のための基本素子を作製することを目的とする。

第1章では、その研究の背景としてエネルギー問題、生体で行われている情報処理の特徴、変動環境下において生体が柔軟に振る舞う仕組み、究極的に目指そうとした生体模倣型情報処理デバイスとその基本素子作製を材料科学の立場から追求することを提示している。

第2章では、材料科学によるアプローチに先立ち、アナログ電子回路と数値シミュレーションにより、生体型情報処理の機能実演について述べている。アナログ電子回路のデモンストレーションに用いた2つの素子は、経時変化に伴い電圧が0Vへ漸近する遅延微分素子と、電圧が $\pm V$ に留まろうとするヒステリシス付き閾値素子である。また、遅延微分素子に外部ノイズを印加し、ヒステリシス素子の閾値超えを外部から印加したノイズによって行わせた。これら2つの素子を1組の複合基本素子とし、2組をリング回路とすることにより、生体型情報処理の機能的エッセンスを模倣するデバイスとした。その結果より、確率的な複合素子のネットワークにより、集団協調動作としての時空間パターンの一つである準周期性信号が創発することが明らかとなった。

第3章では、第2章の機能実演において用いた遅延微分素子に確率性を持たせた、確率的遅延微分素子(SDDE)の設計について述べている。機能実演のように、外部からノイズを印加するのではなく、内部ノイズを発生することが可能な確率的遅延微分素子を作製することを考えた。この内部ノイズ、すなわち時空間ゆらぎは、 V (反応場の体積) の平方根に反比例するため、素子を可能な限り小型化させる必要がある。しかし、1分子レベ

ルからの作製を行うナノファブリケーションは高コストである。そこで、低コストなマクロファブリケーションとして、非相溶結晶性高分子混合系の利用、低融点高分子の融解の利用、さらにナノ薄膜の利用を考えた。非相溶結晶性高分子混合系は結晶性高分子の結晶化と非相溶混合系の相分離が期待できる。その結晶性高分子として、ポリ(L-乳酸)[PLLA]、PLLA と非相溶な高分子として、化学合成生分解性高分子ポリ(ϵ -カプロラクトン)[PCL]を用いた。PLLA を結晶化させると、PLLA の球晶間非晶領域に溝が形成される。このような溝を持つような薄膜を電極で挟んだキャパシタは、PLLA の球晶間非晶領域が最も電極間距離の小さい部分となり、その誘電特性は PLLA の球晶間非晶領域のモルフォロジーに依存する。また、PLLA:PCL の非相溶混合系は相分離を引き起こし、PCL は室温付近に融点(約 60 °C)をもつため、温度上昇に伴い、非相溶混合系のうち PCL 成分が融解し、容量成分のゆらぎが期待できる。さらに、 V (反応場の体積) の平方根に時空間ゆらぎは反比例するため、ナノ薄膜のような小さな体積を持つ系は大きな時空間ゆらぎが期待できる。このように、安価なマクロファブリケーションを用いたナノメートルレベルのゆらぎ発現を起こす戦略を開発し、縦型のクロスバージャンクション型キャパシタの設計を行った。

第 4 章では、実際の SDDE を作製する前に、適切な薄膜の膜厚、薄膜の結晶性、そして混合系混合比の探索について述べている。適切な膜厚を決定するにはスピncコートする際の溶液濃度が要因の一つであり、溶液濃度 5 wt% の高分子溶液を用いたスピncコートにおいて、電極間が短絡することなく、キャパシタとして機能した。また、薄膜に適切な結晶性を持たせるには、6 時間 の PLLA の等温結晶化が必要であることがわかった。さらに、PCL の質量分率が 20 wt% より大きい場合、PCL が素子のピンホールとなり、キャパシタが短絡してしまうことがわかった。以上の結果をもとに、SDDE の作製を進めた。

第 5 章、第 6 章では、SDDE を作製し、素子が持つ時空間ゆらぎを評価したことについて述べている。本研究では、同じ条件を用いて作製した素子間の出力にばらつき(空間ゆらぎ)を持つ素子と、入力信号に対し、経時変化に伴う出力にばらつき(時間ゆらぎ)を持つ素子を作製した。第 5 章では、大きな空間ゆらぎを持つ素子を探索し、その評価について述べている。30 °C における PCL の等温結晶化を行わなかった素子の中で、Cr/Au/130LC5g/Au 素子(130LC5g は PLLA:PCL=95:5(w/w) の混合比で作製し、130°C にて 6 時間等温結晶化後、15°Cmin⁻¹ にて室温まで冷却した薄膜)を誘電緩和測定した結果、誘電損失値の素子間ばらつき(空間ゆらぎ)が見られた。一方、30 °C における PCL の等温結晶化を行った素子は、等温結晶化を行わなかった素子よりも空間ゆらぎが大きい結果となった。

第 6 章では、大きな時間ゆらぎを持つ素子を探索し、その評価を行ったことについて述べている。時間ゆらぎの評価を行うために、素子に直流電場を印加し、その応答信号のノイズ強度を調べるノイズ測定を行った。Cr/Au/130LC5g/Au 素子をノイズ測定した結果、10kHz に対するノイズ強度が大きくなることがわかり、第 5 章で見られた空間ゆらぎに時間ゆらぎも寄与していることが示唆される。また、PLLA:PCL の混合比を変更した素子に

対し、ノイズ測定を行った結果、大きな時間ゆらぎを発生するのに適切なサイズの PCL 液滴を持つ素子の存在がわかった。

第 7 章では、全体の総括を行っており、本研究における発見は、生体模倣型ノイズ駆動情報処理デバイス構築のための基本素子としての利用が期待される。一方で、今回作製した SDDE の時間ゆらぎは、既存のアナログ電子回路へ組み込み動作させるにはそのゆらぎの大きさが不十分であるという問題も指摘している。

第 8 章では、今後の展望を記載している。より大きな時間ゆらぎを得るために、PLLA:PCL 混合系のような非相溶高分子混合系ではなく、相溶高分子混合系や電場応答する液晶の利用が考えられる。また、マクロプロセスを用いたナノゆらぎの制御法は本研究を進めていく上で、発見した作製法であり、他の材料創製への応用が期待できる。

“Fabrication of element for fabrication of bio-inspired signal processing devices with hierarchical instabilities”

Ryota Maruyama

In comparison to conventional digital computers, biological systems perform energetically effective information processing. Furthermore, biological systems adaptively operate with a mechanism of fluctuation-driven attractor selection under unexpected environmental changes, where attractors are generated or annihilated depending on environmental conditions, and the systems undergo noise-induced transitions between attractors in association with environmental changes, to temporally settle down to an appropriate attractor. In this research, we purpose to fabricate electric device elements for development of such bio-inspired signal/information processing devices using suitable functional materials. In Chapter 1, we try to describe (i) the global energy problems, (ii) characteristics of biological information processing, of which mechanism is based on adaptive operation under unexpected environmental changes, (iii) design of bio-inspired information processing devices, and (iv) fabrication of device elements for realization of bio-inspired information processing using functional materials.

In Chapter 2, we firstly demonstrated that prior to device fabrication using functional materials, analog electronic circuits and numerical simulations were used to mimic biological information processing. In the demonstration, employed is a combined element (CE) composed of two competitively operating device elements: namely, one is a delay-derivative element (DDE), which asymptotically approaches zero voltage with time evolution and the other is a threshold element with hysteresis (TEH), which tries to stay at non-zero voltage. To the combined element, mutual independent Gaussian white noises were applied in order to exceed the threshold voltage for TEHs. The ring circuit composed of two CEs was used to demonstrate the emergence of cooperative dynamics, where the CEs showed a quasi-synchronized oscillation.

In Chapter 3, we described the design for DDE using functional materials to perform energetically effective operation. We designed stochastic delay-derivative element (SDDE), which was DDE with noise generation. Since intensity of internal noise is inverse-proportional to square root of device volume, we need to fabricate the element as small as possible. Since nanometer-scale strategy for device fabrications is generally high in cost, we instead utilized novel low-cost fabrication strategy, where

employed was a nano-thin film of immiscible binary mixture of semi-crystalline polymers, one of which is a polymer with low melting point. In using immiscible binary mixture with semi crystalline polymers, we expected crystallization and phase separation of immiscible binary mixture. As semi crystalline polymers, we used poly (L-lactic acid) [PLLA] and Poly (ϵ -caprolactone) [PCL], which are immiscible each other. Associated with the crystallization of PLLA, the dips are formed in inter-spherulitic amorphous (ISA) region. When the thin film is sandwiched between two electrodes, it is suggested that inter-electrode distance between top and bottom electrodes in the ISA region gives minimum value with respect to those in the other portions of thin films. Therefore, electrical property in the ISA region should dominate dielectric properties of the device element. Since the immiscible binary mixture of PLLA:PCL undergoes phase separation and the melting point of PCL is approximately 60 °C, which is near room temperature, the melting of the PCL component in immiscible binary mixture is expected to fluctuate capacitance of the device element. In general, a device element with the smaller size gives noise with the larger intensity. From this viewpoint, nano-thin film featuring by the ISA region could be suitable for noise generation. This argument motivates the author to design novel capacitor with a type of crossbar junction using the above described macroscopic strategy instead of high-cost nano-scale device fabrications.

In Chapter 4, prior to practical SDDE device fabrication, we explored to find appropriate thickness of thin films, crystallinity of thin films, and composition of mixtures, in order to maximize noise generation. The thickness of thin film depends on concentration of the solution which is used for spin coating. In this research, 5 wt% is selected for fabrication of device elements which functioned as a capacitor without short-circuiting between the electrodes. The spin coating process was followed by isothermal crystallization of PLLA of six hours, which was found to be suitable crystallinity of thin films for noise generation. Furthermore, the compositional fraction of PCL with larger than 20 wt% causes pinholes in the device elements, leading to short-circuiting.

In Chapter 5 and 6, the author has fabricated SDDEs to measure spatio-temporal fluctuations in SDDEs. In this research, “spatial fluctuation” stands for dispersion of electric properties among device elements that were fabricated using an identical fabricating processing method, whereas “temporal fluctuation” for time fluctuation of single device element. In Chapter 5, we found the fabrication condition for the element with large spatial fluctuations. For device elements without isothermal crystallization at 30 °C, the maximum standard deviation(SD) in dielectric relaxation

among all the fabricating procedures employed in this research was found for Cr/Au/130LC5g/Au element, where “130LC5g” denotes a device element that was gradually cooled with a rate of $15\text{ }^{\circ}\text{C min}^{-1}$ after isothermal crystallization at $130\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 6 hours following spin-coating. For device elements with an isothermal crystallization of PCL at $30\text{ }^{\circ}\text{C}$, large standard deviations were also observed.

In Chapter 6, the author explored the fabricating condition for elements with large time fluctuation. In order to evaluate time fluctuations, the author performed noise measurements, where time course of noise intensity under a constant bias voltage was measured. In the result of measurement for Cr/Au/130LC5g/Au element, noise intensity was larger than the other elements. This was evaluated from the analyses at frequency of 10 kHz. Therefore, the large SDs for 130LC5g that was described in Chapter 5, is attributed not only to the contribution from spatial fluctuation but also time fluctuations. We also performed noise measurement for device elements of PLLA:PCL with various compositional fractions of PCL. The result provides information about optimal size of a PCL droplet in the ISA region for generation of large time fluctuation.

In Chapter 7, the author briefly summarized his research as follows. The SDDEs fabricated in this research could be useful for bio-inspired noise-driven signal/information processing devices. However, at the same time, the device element shows a lack of noise intensity enough to drive bio-inspired signal/information processing devices using conventional analog electric circuit that was used to the functional demonstration in Chapter 2.

In Chapter 8, the author described future perspectives in the relevant research field. For obtaining more large time fluctuation, the author plans to use miscible binary mixture or liquid crystal which has electric field responsibility, instead of immiscible binary mixtures. Concomitantly to this approach, the currently developed controlling method for nano-scale fluctuation using macroscopic processing strategy would be applicable to other material systems including liquid crystalline systems.